

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2002-255518

(43)Date of publication of application : 11.09.2002

(51)Int.Cl.

C01B 31/02

(21)Application number : 2001-054344

(71)Applicant : JAPAN ATOM ENERGY RES INST

(22)Date of filing : 28.02.2001

(72)Inventor : WATANABE SATOSHI

ISHIOKA NORIKO

SEKINE TOSHIKI

CHO AKIHIKO

KOIZUMI MITSUO

MURAMATSU HISAKAZU

SHIMOMURA HARUHIKO

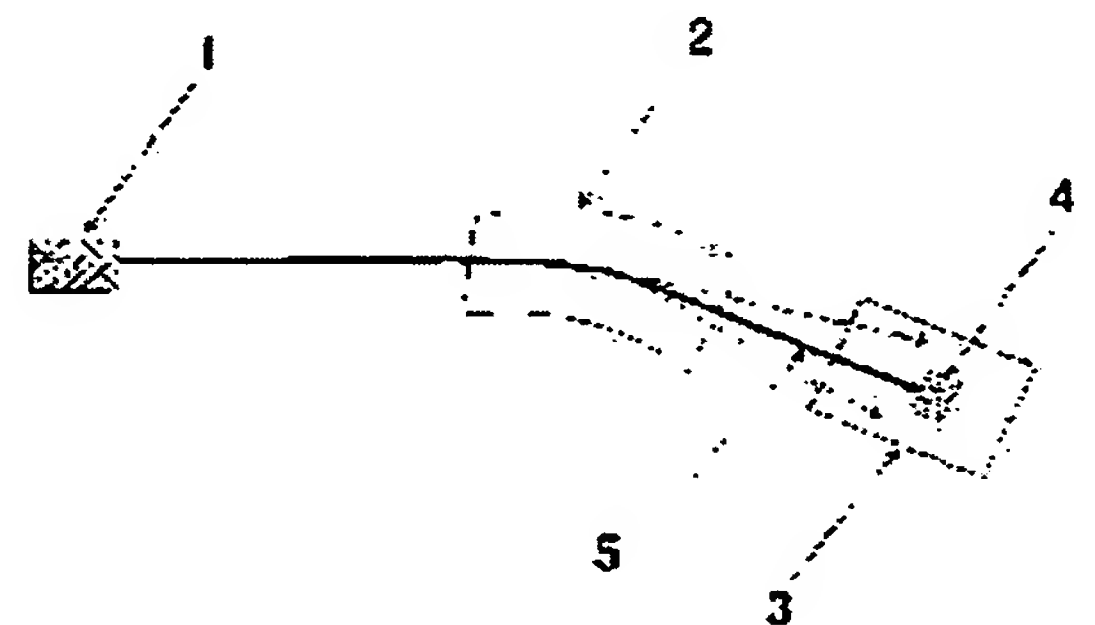
YOSHIKAWA HIROSUKE

(54) PRODUCTION METHOD FOR FULLERENE SELECTIVELY INCLUDING ISOTOPE ATOM BY ION IMPLANTATION METHOD

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a method by which a radioactive isotope is included into fullerene by an ion implantation method.

SOLUTION: The production method for fullerene including a specific isotope such as a radio active isotope is a method implanting the isotope using fullerene or a fullerene derivative as a target and an ion injector equipped with a mass spectrometry magnet.



LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2002-255518

(P2002-255518A)

(43) 公開日 平成14年9月11日 (2002.9.11)

(51) Int.Cl.⁷

C 0 1 B 31/02

識別記号

1 0 1

F I

C 0 1 B 31/02

テーマコード(参考)

1 0 1 F 4 G 0 4 6

審査請求 未請求 請求項の数 1 O L (全 3 頁)

(21) 出願番号 特願2001-54344(P2001-54344)

(22) 出願日 平成13年2月28日 (2001.2.28)

特許法第30条第1項適用申請有り 平成12年9月12日
日本放射化学会発行の「日本放射化学会誌 第1巻別冊
2」に発表

(71) 出願人 000004097

日本原子力研究所

東京都千代田区内幸町2丁目2番2号

(72) 発明者 渡辺 智

群馬県高崎市綿貫町1233番地 日本原子力
研究所高崎研究所内

(72) 発明者 石岡 典子

群馬県高崎市綿貫町1233番地 日本原子力
研究所高崎研究所内

(74) 代理人 100089705

弁理士 社本 一夫 (外5名)

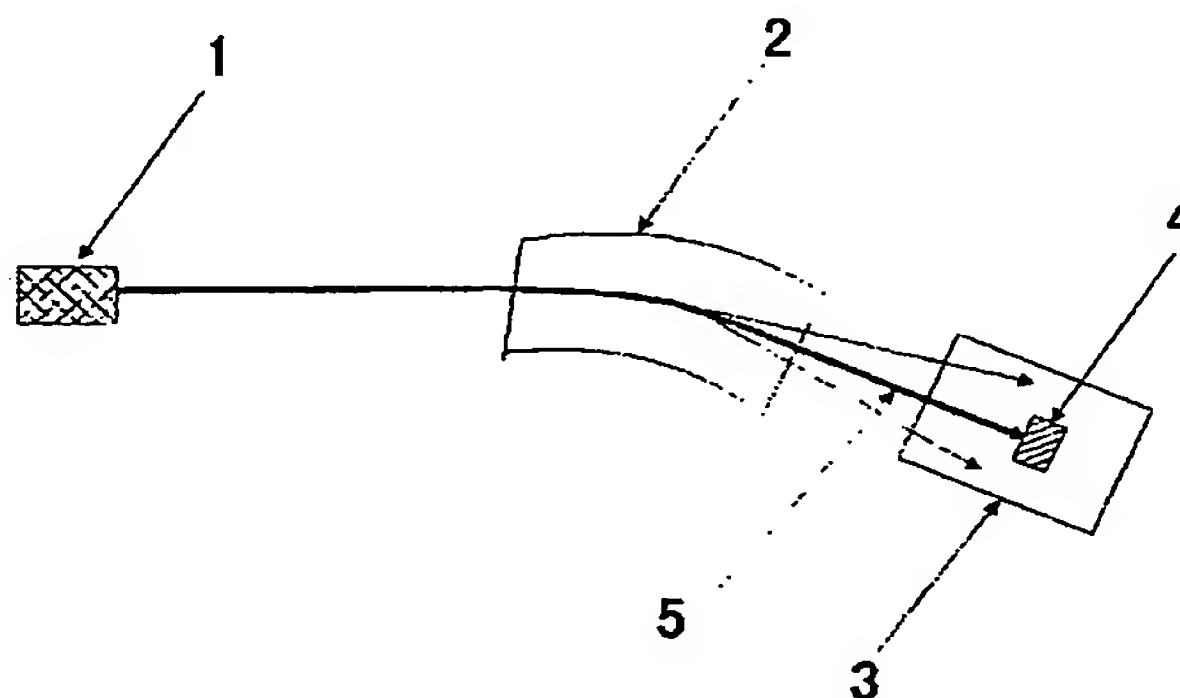
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 イオン注入法による同位元素選択的原子内包フラーレンの製造方法

(57) 【要約】

【課題】 イオン注入法により放射性同位元素等をフラーレンに内包させることに関する。

【解決手段】 質量分析マグネットを装備したイオン注入器を用い、フラーレンおよびフラーレン誘導体をターゲットとして放射性同位元素等の特定同位元素をイオン注入する原子内包フラーレンの製造方法。



【特許請求の範囲】

【請求項1】 質量分析マグネットを装備したイオン注入器を用い、フラーレンおよびフラーレン誘導体をターゲットとして放射性同位元素等の特定同位元素をイオン注入することを特徴とする原子内包フラーレンの製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】 この発明は、放射性同位元素等をフラーレンに内包させることに関するものであり、同位元素内包フラーレンを製造するためにイオン注入法を用いることを特徴とするものである。

【0002】

【従来の技術】 イオン注入法を用いた内包フラーレンの製造方法としては、Li等のアルカリ元素内包フラーレン (Telligmann R. et al., Nature 382, 407-408 (1996)、N内包フラーレン (Weidinger A. et al., Appl. Phys. A 66, 287-292 (1998)) およびHe、Ne内包フラーレン (Shimshi R. et al., J. Am. Chem. Soc. 119, 1163-1164 (1997)) などが報告されている。これらはすべて、非同位元素選択的内包フラーレンに関する製造方法である。また、キセノンの放射性同位体であるXe-127を内包したフラーレンの製造方法は、 $^{127}\text{I}(\text{d}, 2\text{n})^{127}\text{Xe}$ 反応における反跳エネルギーを利用したもの (Ohtsuki T. et al., Physical Review Letters 81, 967-970 (1998)) が報告されている。

【0003】 しかし、核反応を用いた場合、目的以外の放射性同位元素内包フラーレンが生成する可能性がある。さらに、目的の同位元素を炭素棒電極に含ませておき、アーク放電法により同位元素内包フラーレンを製造する方法が報告されている (Ambe F., J. Radioanal. Nucl. Chem. 243, 21-25 (2000))。しかし、この方法で作られた金属内包フラーレンのフラーレン種は、多種類生成してしまい、任意のフラーレン種の内包フラーレンを作ることができない。

【0004】

【発明が解決しようとする課題】 従来の技術として、イオン注入によるLi、N、HeおよびNe内包フラーレンの製造方法が報告されているが、これらはすべて非同位元素選択的なものである。また、核反応を用いた放射性同位元素内包フラーレンの製造方法が報告されているが、目的以外の同位元素内包フラーレンが生成してしまい、単一の同位元素内包フラーレンを作ることができない。

【0005】 さらに、アーク放電法を用いた同位元素内包フラーレンの製造方法が報告されているが、これは任意のフラーレン種 (C₆₀、C₇₀、C₈₂等、フラーレン誘導体を含めてその他多数のフラーレン種の存在が明らかになっている) の内包フラーレンが生成できない。そこで、本発明はこれらの問題を解決するために創案されたものである。

【0006】

【課題を解決するための手段】 本発明は、単一の同位元素のイオン注入が可能なイオン注入器を用いることにより、目的以外の同位元素を含まない内包フラーレンを製造できる。さらに、イオン注入のターゲットとして任意のフラーレン種を選べることから、任意のフラーレン種の内包フラーレンを製造することができる。

【0007】

【発明の実施の形態】 イオン注入器によるイオン注入について

本発明では、単一の同位元素をイオン注入するために、質量分析マグネットを備えたイオン注入器 (図1) を用いる。以下にそのイオン注入器の概要を示す。イオン注入器のターゲットチャンバー3内にターゲット4を設置して真空中でイオン注入を行う。このとき、イオン源1で生成された種々のイオンはイオンビームとして質量分析マグネット2に運ばれる。ここでイオンビームの質量分離が行われるため、ターゲット4には目的の同位元素イオンビーム5だけがイオン注入される。

【0008】 ターゲットについて

イオン注入のターゲットとしては、フラーレン誘導体も含めて任意のフラーレン種を用いる。また、本発明で用いるイオン注入器は特定の同位元素を質量分離するため、通常40 keVで稼働させるが、同位元素内包フラーレンを製造する上で、同位元素イオンの入射エネルギーとしては高すぎるため、そのイオンの減速が必要である。そこで、以下に示す減速法の異なる2つの方法を用いる。

(1) フラーレンと減速材 (CsI等の粉末) を任意の割合で混合してペレット状のターゲットを作成し、これに同位元素のイオン注入を行う。

(2) 金属箔にフラーレンを蒸着して薄膜ターゲットを作成する。この薄膜ターゲットの前面に減速装置として+の電圧をかけたスリットを設置して同位元素のイオン注入を行う。以下に放射性同位元素であるXe-133を例にあげ、本発明の具体的な実施例を示す。

【0009】

【実施例】 ^{133}Xe ガス200 MBqを真空ラインにより3.8リットル試料ボンベに移送した。質量分離における質量の指標として約3 cm³の ^{129}Xe 濃縮同位体も同じボンベに充填した。このボンベをイオン注入器のNielsen型イオン源に接続し、40 keVでターゲットであるフラーレンに ^{133}Xe をイオン注入した。ターゲットは2種類の方法で作成した。1つ目は、CsCl (0.8 g) をサポートとし、50 mgのフラーレン (C₆₀) と18 mgのCsIを混合したものを加圧成型し、ペレット (直径18 mm) を作製した。2つ目は、蒸着装置を用いてNi箔 (25×25 mm) にフラーレン (C₆₀) を約1.5 μm蒸着したものをターゲットとした。このNi箔蒸着ターゲットを用いる場合、ターゲットの前面に減速装置として+の電圧をかけたスリットを設

置して $^{133}\text{Xe}^+$ イオンを0.5~3 keVに減速させた。イオン注入後、これらのターゲットをo-ジクロロベンゼンに溶解し、高速液体クロマトグラフィー (HPLC) によりフラーレンを分析した。また、溶出液を分取して、Xe-133の放射能を測定した。HPLCによるフラーレンのピークと溶出液中のXe-133のピークが一致したことから、Xe-133内

包フラーレンが生成していることが確認された。また、ターゲットにイオン注入されたすべてのXe-133の放射能に対するフラーレンに内包されたXe-133の放射能の割合を捕獲確率として算出した。

【数1】

$$\text{捕獲確率(\%)} = \frac{\text{Xe-133 内包フラーレンの放射能}}{\text{ターゲットにイオン注入されたXe-133の放射能}} \times 100$$

上述した条件で作成したペレットを用いた時の捕獲確率は、現段階で最大値 (0.28%) を示した。なお、ターゲットであるフラーレンからのXe-133内包フラーレンの単離は、HPLCを用いることにより (DiCamillo B. A. et al., J. Phys. Chem. 100(22), 9197-9201 (2000)) 原理的には可能である。また、ここではXe-133のイオン注入の例を示したが、イオン化が可能な同位元素であれば、原理的にはそれらすべての同位元素内包フラーレンを本発明を用いて作ることができる。

【0010】

【発明の効果】本発明により、目的以外の同位元素を含まず、かつ任意のフラーレン種の同位元素内包フラーレンを作ることができる。さらに、作成した同位元素内包

フラーレンは核医学での利用の可能性がある。実施例のXe-133は β^- 線放出核種であるため、Xe-133内包フラーレンを癌に集まるような化学形に変換すれば、癌の治療薬として利用できると考えられる。

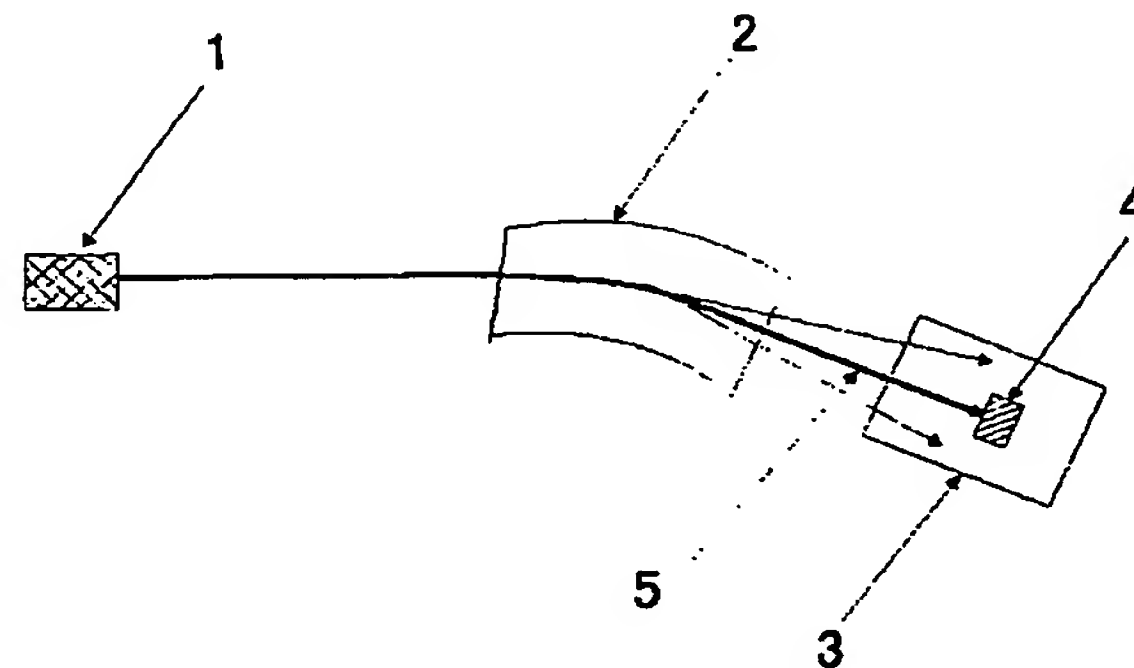
【図面の簡単な説明】

【図1】 同位元素内包フラーレンを製造するためのイオン注入器を示した図である。

【符号の説明】

- 1 イオン源
- 2 質量分析マグネット
- 3 ターゲットチャンバー
- 4 ターゲット
- 5 目的の同位元素イオンビーム

【図1】



フロントページの続き

(72) 発明者 関根 俊明
群馬県高崎市綿貫町1233番地 日本原子力
研究所高崎研究所内

(72) 発明者 長 明彦
群馬県高崎市綿貫町1233番地 日本原子力
研究所高崎研究所内

(72) 発明者 小泉 光生
群馬県高崎市綿貫町1233番地 日本原子力
研究所高崎研究所内

(72) 発明者 村松 久和
長野県長野市大字西長野6の口 信州大学
内

(72) 発明者 下村 晴彦
長野県長野市大字西長野6の口 信州大学
内

(72) 発明者 吉川 広輔
長野県長野市大字西長野6の口 信州大学
内

Fターム(参考) 4G046 CB01 CC10